

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: 90108499.6

51 Int. Cl.<sup>5</sup>: **C07C 237/06, C07C 229/16,  
C10L 1/22**

22 Anmeldetag: 07.05.90

30 Priorität: 19.05.89 DE 3916366

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
22.11.90 Patentblatt 90/47

34 Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE DE FR GB IT NL SE

71 Anmelder: **BASF Aktiengesellschaft**  
**Carl-Bosch-Strasse 38**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**

72 Erfinder: **Oppenlaender, Knut, Dr.**  
**Otto-Dill-Strasse 23**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**  
Erfinder: **Wegner, Brigitte, Dr.**  
**Paul-Egell-Strasse 7**  
**D-6720 Speyer(DE)**  
Erfinder: **Barthold, Klaus, Dr.**  
**Paulusbergstrasse 4**  
**D-6800 Mannheim 51(DE)**  
Erfinder: **Schwartz, Erich, Dr.**  
**Mohnstrasse 37**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**  
Erfinder: **Buettner, Egon**  
**Wolframstrasse 16**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**  
Erfinder: **Schramm, Manfred**  
**Buergermeister-Lamberth Strasse 31**  
**D-6806 Viernheim(DE)**

54 **Neue Umsetzungsprodukte von Aminoalkylenpolycarbonsäuren mit sekundären Aminen und Erdölmitteldestillatzusammensetzungen, die diese enthalten.**

57 **Neue Umsetzungsprodukte von Aminoalkylenpolycarbonsäuren mit sekundären Aminen und ihre Verwendung als Zusatz zu Mitteldestillaten gegebenenfalls zusammen mit als Fließverbesserern an sich bekannten Ethylencopolymerisaten und Leitfähigkeitsverbesserern.**

**EP 0 398 101 A1**

## Neue Umsetzungsprodukte von Aminoalkylenpolycarbonsäuren mit sekundären Aminen und Erdölmit- teldestillatzusammensetzungen, die diese enthalten

Die Erfindung betrifft neue Umsetzungsprodukte von Aminoalkylen-carbonsäuren mit sekundären langkettigen Aminen, sowie Mitteldestillate mit einem Gehalt dieser Umsetzungsprodukte, mit verbesserter Kältefließfähigkeit und besserer Dispergierung der ausgeschiedenen Paraffinkristalle.

Mitteldestillate wie z.B. Gasöle, Dieselöle oder Heizöle, die durch Destillation aus Erdölen gewonnen werden, haben je nach Herkunft des Rohöls unterschiedliche Gehalte an Paraffinen. Bei tieferen Temperaturen kommt es zur Ausscheidung fester Paraffine (Trübungspunkt oder Cloud Point, CP). Bei weiterer Abkühlung bilden die plättchenförmigen n-Paraffinkristalle eine "Kartenhausstruktur" und das Mitteldestillat stockt, obwohl der überwiegende Teil des Mitteldestillates noch flüssig ist. Durch die ausgefallenen n-Paraffine im Temperaturgebiet zwischen Trübungspunkt und Stockpunkt (Pour point) wird die Fließfähigkeit der Erdöldestillat-Brenn- bzw. Kraftstoffe erheblich beeinträchtigt. Die Paraffine verstopfen Filter und verursachen ungleichmäßige oder völlig unterbrochene Kraftstoffzufuhr zu den Verbrennungsaggregaten. Ähnliche Störungen treten bei Heizölen auf.

Es ist seit langem bekannt, daß durch geeignete Zusätze das Kristallwachstum der Paraffine in den Erdöldestillat Brenn- und Kraftstoffen modifiziert werden kann. Gut wirksame Additive verhindern einerseits, daß Mitteldestillate derartige Kartenhaus-Strukturen ausbilden und bei Temperaturen wenige Grad Celsius unterhalb der Temperatur, bei welcher die ersten Paraffinkristalle auskristallisieren, bereits fest werden und andererseits feine, gut kristallisierte, separate Paraffinkristalle bilden, welche Filter in Kraftfahrzeugen und Heizungsanlagen passieren oder zumindest einen für den flüssigen Teil der Mitteldestillate durchlässigen Filterkuchen bilden, so daß ein störungsfreier Betrieb sichergestellt ist.

Ein Nachteil dieses Standes der Technik beruht darauf, daß die ausgefallenen Paraffinkristalle aufgrund ihrer gegenüber dem flüssigen Teil höheren Dichte dazu neigen, sich beim Lagern mehr und mehr am Boden des Behälters abzusetzen. Dadurch bildet sich eine im oberen Behälterteil homogene paraffinarme Phase und am Boden eine zweiphasige paraffinreiche Schicht. Da sowohl in Fahrzeugtanks als auch in Lager- oder Liefertanks der Mineralölhändler der Abzug des Mitteldestillates meist wenig oberhalb des Behälterbodens erfolgt, besteht die Gefahr, daß die hohe Konzentration an festen Paraffinen zu Verstopfungen von Filtern und Dosiereinrichtungen führt. Diese Gefahr wird umso größer, je weiter die Lagertemperatur die Ausscheidungstemperatur der Paraffine (Trübungspunkt) unterschreitet, da die ausgeschiedene Paraffinmenge eine Funktion der Temperatur darstellt und mit sinkender Temperatur ansteigt.

Bei den Paraffinkristallmodifikatoren, den sog. Fließverbesserern, handelt es sich um Polymere, die durch Co-Kristallisation (Interaktion) das Kristallwachstum der n-Paraffine verändern. Dabei werden die Fließeigenschaften des Mitteldestillats bei niedrigeren Temperaturen positiv beeinflusst. Die Wirksamkeit der Fließverbesserer wird nach DIN 51428 indirekt durch Messung des "Cold Filters Plugging Points" ("CFPP") ausgedrückt.

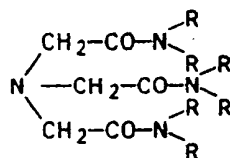
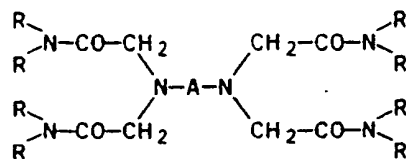
Als Kältefließverbesserer werden an sich bekannte Ethylencopolymerisate, vor allem Copolymere von Ethylen und ungesättigten Estern, verwendet. DE 11 47 799 und 19 14 756 beschreiben beispielsweise Copolymerisate des Ethylens mit Vinylacetat, mit einem Gehalt von 25 bis 45 Gew.-% Vinylacetat oder Vinylpropionat und einem Molekulargewicht von 500 bis 5000.

Weiterhin ist aus GB 2 095 698 bekannt, Mitteldestillaten eine Kombination aus den genannten Copolymeren mit Amiden aus langkettigen Aminen und aromatischen oder cycloaliphatischen Carbonsäuren zuzusetzen.

Bezüglich der Dispergiereigenschaften der ausgeschiedenen Paraffine befriedigen diese Mischungen aber noch nicht.

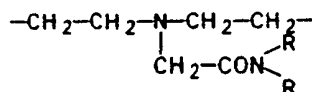
Es bestand daher die Aufgabe, Zusätze zu Mitteldestillaten vorzuschlagen, die eine verbesserte Paraffindispergierung bei guter Fließverbesserung besitzen.

Diese Aufgabe wurde mit neuen Umsetzungsprodukten, das sind Amide bzw. Ammoniumsalze von Aminoalkylenpolycarbonsäuren mit sekundären Aminen der Formeln I und II



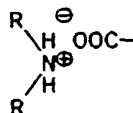
15 gelöst, in denen

A einen geradkettigen oder verzweigten Alkylrest mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen oder den Rest der Formel



und

R im wesentlichen gradkettige aliphatische Reste, insbesondere Alkylreste mit 10 bis 30, bevorzugt 14 bis 24 C-Atomen bedeutet, wobei die Amidstrukturen auch zum Teil oder vollständig in Form der Ammoniumsalzstruktur der Formel



vorliegen können.

Die Amide bzw. Amid-Ammoniumsalze bzw. Ammoniumsalze z.B. der Nitrilotriessigsäure, der Ethylen-diamintetraessigsäure oder der Propylen-1,2-diamintetraessigsäure werden durch Umsetzung der Säuren mit 0,5 bis 1,5 Mol Amin, bevorzugt 0,8 bis 1,2 Mol Amin pro Carboxylgruppe erhalten.

Die Umsetzungstemperaturen betragen etwa 80 bis 200 °C, wobei zur Herstellung der Amide eine kontinuierliche Entfernung des entstandenen Reaktionswassers erfolgt. Die Umsetzung muß jedoch nicht vollständig zum Amid geführt werden, vielmehr können 0 bis 100 Mol.-% des eingesetztenamins in Form des Ammoniumsalzes vorliegen.

Als Amine der Formel



kommen insbesondere Dialkylamine in Betracht, in denen R einen geradkettigen Alkylrest mit 10 bis 30 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise 14 bis 24 Kohlenstoffatomen, bedeutet. Im einzelnen seien Dioleylamin, Dipalmitinamin, Dikokosfettamin und Dibehenylamin und vorzugsweise Ditalgfettamin genannt.

Die neuen Amide bzw. Ammoniumsalze der Aminoalkylenpolycarbonsäuren der Formel I und II werden den Erdölmitteldestillaten in Mengen von 50 bis 1000 ppm, bevorzugt 100 bis 500 ppm, zugesetzt. In der Regel enthalten die Mitteldestillate bereits Ethylen-Vinylester-Copolymerisate, insbesondere Ethylen-Vinylacetatcopolymerisate wie sie z.B. in DE 19 14 756 beschrieben sind.

Nach einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung enthalten die Erdölmitteldestillatzusammensetzungen geringe Mengen der Komponenten der folgenden Additivkombination aus

a) 50-1000 ppm, bevorzugt 100-500 ppm der Aminoalkylenpolycarbonsäurederivate gemäß Formel I und/oder II

b) an sich bekannten Ethylencopolymerisat-Fließverbesserern, z.B. Ethylen-Vinylestercopolymerisaten, in Mengen von 50-1000 ppm, bevorzugt 50 bis 500 ppm und

c) Leitfähigkeitsverbesserern in Form von Salzen, insbesondere von Carbonsäuren und Sulfonsäuren bzw. deren Metall- und Ammoniumsalzen in Mengen von 0,25 bis 40 ppm, bevorzugt 1,5 bis 20 ppm

Die an sich bekannten Fließverbesserer (b) sind in der Patentliteratur eingehend beschrieben. Beispielsweise seien die Deutsche Patentschrift 19 14 756, EP 214786 ( $\alpha$ -Olefin/MSA-Ester) und EP 155807 (Alkylfumarate/VAC-Copolymere) genannt, auf die hiermit Bezug genommen wird. Es kommen jedoch auch gleichermaßen Terpolymerisate in Betracht, die neben Ethylen und Vinylestern oder Acrylestern noch weitere Comonomere einpolymerisiert enthalten.

Bevorzugte Copolymerisate (b) sind solche, die im wesentlichen Ethylen und 25 bis 45 Gew.-% Vinylacetat, Vinylpropionat oder Ethylhexylacrylat enthalten. Ferner sind Copolymerisate zu nennen, die beispielsweise Fumarsäureester enthalten. Das Molekulargewicht der Fließverbesserer beträgt in der Regel 500 bis 5000, vorzugsweise 1000 bis 3000.

Auch Mischungen verschiedener Fließverbesserer kommen in Betracht.

Als Leitfähigkeitsverbesserer (c) für Mitteldestillate kommen allgemein kohlenwasserstofflösliche Carbonsäuren und/oder Sulfonsäuren oder deren Salze in Betracht.

Die Grundleitfähigkeit von Mitteldestillaten beträgt ca. 5-10 ps/m, gemessen nach DIN 51 412. Schwankungen treten auf durch unterschiedliche Gehalte an Wasser, Salzen, Naphthensäuren, Phenolen und anderen schwefel- und stickstoffhaltigen Verbindungen.

Eine Anhebung der Leitfähigkeit um den Faktor 2 bis 3, bezogen auf die Grundleitfähigkeit, ist für das Dispergierverhalten der beschriebenen Paraffindispersatoren manchmal vorteilhaft.

Der Zusatz der Leitfähigkeitsverbesserer, wie sie z.B. in DE-OS 21 16 556 beschrieben sind, bewirken bereits in Mengen von 0,3 bis 1 ppm im Mitteldestillat eine Verbesserung des Ansprechverhaltens. Andere, weniger wirksame Leitfähigkeitsverbesserer erfordern naturgemäß eine höhere Konzentration. Der Zusatz deutlich größerer Mengen als der Beanspruchten ist zwar möglich, bringt aber keine wesentlichen technischen Vorteile.

Im einzelnen kommen ferner Metallsalze von kohlenwasserstofflöslichen Carbon- und Sulfonsäuren, wie sie sich unter der Bezeichnung ASA3.Shell im Handel befinden, sowie andere übliche Leitfähigkeitsverbesserer, wie das marktübliche Handelsprodukt Stadis 450 von DuPont, dessen Zusammensetzung nicht bekannt ist, in Betracht.

Die besondere Wirkung der genannten Kombination a+b+c ist überraschend und läßt sich aus den Eigenschaften der Komponenten nicht ableiten.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen, gegebenenfalls zusammen mit den genannten weiteren Zusätzen können auch vorteilhaft in Form von flüssigen Konzentraten und in einfacherer Weise den Mitteldestillaten zudosiert werden.

Diese Konzentrate enthalten die Verbindungen der Formel I und/oder II in Mengen von 10 bis 60 Gew.%, gelöst in einem an sich bekannten Kohlenwasserstofflösungsmittel, z.B. Solvesso® der Firma Esso, unter Zusatz von mindestens 5 Gew.%, vorzugsweise 10 bis 20 Gew.%, bezogen auf die Gesamtmenge, eines Monoesters aus Phthalsäure und einem aliphatischen Alkohol von 6 bis 14 Kohlenstoffatomen, insbesondere 2-Ethylhexylphthalat.

Die Erfindung wird durch die folgenden Beispiele erläutert:

#### Beispiele

##### A) Herstellung der Nitriloessigsäureamide

1) 240 g (0.48 Mol) Ditalgfettamin und 35 g (0.12 Mol) Ethylendiaminotetraessigsäure wurden aufgeschmolzen und auf 190 °C erhitzt, wobei das entstandene Reaktionswasser kontinuierlich abdestillierte. Die Umsetzung wurde nach ca. 25 Stunden bei einer Säurezahl < 10 und einer Aminzahl < 1.1 abgebrochen. Durch Anlegen von Wasserstrahlvakuum (2 Stunden, 120 °C) wurde das Reaktionswasser vollständig entfernt. Man erhielt 265 g eines braunen, wachsartigen Feststoffes (= Paraffindispersator PD. (D) in den Tabellen).

2) 100 g (0.2 Mol) Ditalgfettamin und 14.6 g (0.05 Mol) Ethylendiaminotetraessigsäure wurden 8 Stunden auf 180 °C erwärmt. Nach dieser Zeit waren ca. 50% des Amins zum Amid abgereagert (Säurezahl 45.8, Theorie 49.7). Man erhielt 97.6 g des Amid/Ammoniumsalzes als hellbraunen, wachsartigen Feststoff.

3) In eine Schmelze von 229.5 g (0.45 Mol) Ditalgfettamin wurden bei 80 °C 28.65 g (0.15 Mol)

Nitrilotriessigsäure (Trilon A) eingetragen. Anschließend wurde die Reaktionsmischung 10 Stunden auf 180 bis 190 °C erhitzt. Zur vollständigen Entfernung des Reaktionswassers wurde das Produkt noch 2 Stunden bei 120 °C am Wasserstrahlvakuum getrocknet. Man erhielt 249 g (Theorie 250 g) hellbraunen, wachsartigen Feststoff (= Paraffindispersgator PD (H) in den Tabellen).

5

B) Erdölmitteldestillatzusammensetzungen enthaltend

- a) Nitriloessigsäureamide gemäß A),  
b) als Fließverbesserer

10 FI (A) Ethylen/Vinylpropionat (mit ca. 40 Gew.% Vinylpropionat) mit einem mittleren Molekulargewicht von ca. 2500 (Dampfdruckosmometrie)

FI (B) Ethylen/Vinylacetat (mit ca. 30 Gew.% Vinylacetat) mit einem mittleren Molekulargewicht von ca. 2500.

15 FI (C) Ethylen/Ethylhexylacrylat (mit 50 Gew.% Ethylhexylacrylat) mit einem mittleren Molekulargewicht von ca. 2500.

- c) als Leitfähigkeitsverbesserer

LV. (E) (Kerostat 5009) gemäß Beispiel 1 der DE 21 16 556

LV. (F) (ASA 3/Shell) Kohlenwasserstofflösliches sulfocarbonsaures Salz

LV. (G) (Stadis 450/Du Pont) Leitfähigkeitsverbesserer unbekannter Zusammensetzung

20 Als Mitteldestillate wurden für die folgenden Versuche Heizöl EL und Dieselkraftstoff in handelsüblicher westdeutscher Raffineriequalität verwendet. Sie sind als Mitteldestillat A, B, C bezeichnet, wobei DK Dieselkraftstoff und HEL Heizöl EL bedeutet.

25

	Mitteldestillat		
	DK 1 (A)	DK 2 (B)	HEL (C)
Trübungspunkt (°C)	- 7 °C	- 7 °C	+ 4 °C
CFPP (°C)	- 10 °C	- 13 °C	- 1 °C
Dichte b. 20 °C (g/ml)	0,817	0,827	0,826
30 Siedeanfang (°C)	156	165	171
20 % Siedepunkt (°C)	204	210	218
90 % Siedepunkt (°C)	309	318	344
Siedeende (°C)	350	358	369

35

#### Beschreibung der Testmethode

40

Die Mitteldestillate wurden mit unterschiedlichen Mengen an Fließverbesserern allein und/oder zusammen mit Paraffindispersgatoren in Kombination mit Leitfähigkeitsverbesserer bei Temperaturen unterhalb des Trübungspunktes geprüft. Die Abkühlung erfolgte mit Hilfe eines Temperaturprogramms. Die Mitteldestillate A, B (Dieselkraftstoffe, Tabelle I, II) wurden dabei von Raumtemperatur auf -12 °C mit einer Abkühlrate von 1 °C/h abgekühlt und bei -12 °C 24 h gelagert. Das Mitteldestillat C (Heizöl, Tabelle III) wurde ebenfalls von ca. 20 °C mit 1 °C/h auf -4 °C abgekühlt und ebenfalls bei -4 °C/24 h gelagert. Die Versuche wurden mit 100 ml und 1000 ml Mitteldestillatvolumina durchgeführt. In den Tabellen I-III sind aufgeführt: Volumen der sedimentierten Paraffinphase (%) (optisch bewertet), cloud point (CP) und cold filter plugging point (CFPP) in Bodennähe (untere 40 Vol.%), CP und CFPP des oberen Bereichs (obere 60 Vol.%) sowie der CP und CFPP des die Zusätze enthaltenden Mitteldestillates vor dem Lagertest.

50

Wie sich aus den folgenden Tabellen ergibt, wird durch Zusatz von leitfähigkeitsverbessernden Additiven die Sedimentation der Paraffine zusätzlich reduziert.

Tabelle I: Mitteldestillat A

Tabelle II: Mitteldestillat B

55 Tabelle III: Mitteldestillat C

Tabelle IV-VI: Mitteldestillat A.

In diesen Tabellen bedeuten

Art:

T = trüb

K = klar

LD = leicht dispergiert

D = dispergiert

5 FI = Mitteldestillatfließverbesserer (b)

PD = Paraffindispersator (a)

LV = Leitfähigkeitsverbesserer (c)

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

Tabelle I  
Mitteldestillat A CP -7 ° C/CFPP -10 ° C

FI (b)		PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase	
Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	CP (° C)	CFPP (° C)	(Vol.%)		CP (° C)	CFPP (° C)	CP (° C)	CFPP (° C)
FI(A)	150	-	-	-	-	-8	-14	5	T	-4	-12	-12	-14
FI(A)	300	-	-	-	-	-8	-18	12	T	-4	-12	-11	-17
FI(A)	600	-	-	-	-	-8	-18	28	K	-5	-10	-12	-17
FI(A)	-	PD(D)	150	-	-	-7	-9	3	T	-2	-4	-12	-15
FI(A)	-	PD(D)	300	-	-	-7	-9	2	T	-2	-5	-12	-15
FI(A)	-	PD(D)	500	-	-	-8	-10	3	LD	-4	-7	-11	-15
FI(A)	-	-	-	LV(E)	1	-8	-9	37	K	-1	-5	-12	-15
FI(A)	-	-	-	LV(E)	5	-7	-9	39	K	-2	-5	-12	-16
FI(A)	150	PD(D)	150	-	-	-8	-15	2	D	-4	-12	-10	-20
FI(A)	150	PD(D)	150	LV(E)	1	-7	-20	0	D	-7	-20	-8	-20
FI(A)	150	PD(D)	150	LV(E)	5	-8	-19	0	D	-7	-20	-9	-20
FI(A)	300	PD(D)	300	-	-	-8	-29	23	LD	-4	-21	-10	-32
FI(A)	300	PD(D)	300	LV(E)	1	-7	-29	0	D	-7	-29	-8	-30
FI(A)	300	PD(D)	300	LV(E)	5	-8	-30	0	D	-7	-30	-8	-31
FI(A)	300	PD(D)	500	-	-	-7	-26	5	LD	-5	-22	-10	-30
FI(A)	300	PD(D)	500	LV(E)	1	-8	-28	3	D	-7	-24	-8	-29
FI(A)	300	PD(D)	500	LV(E)	5	-8	-29	0	D	-8	-27	-9	-29

Tabelle II

Mitteldestillat B CP -7 °C/CFPP -13 °C														
Fl(b)		PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase		
Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	CP (°C)	CFPP (°C)	(Vol.%)		CP (°C)	CFPP (°C)	CP (°C)	CFPP (°C)	
Fl.(A)	150	-	-	-	-	-7	-13	13	T	-4	-8	-11	-15	
Fl.(A)	300	-	-	-	-	-7	-13	18	T	-4	-9	-11	-15	
Fl.(A)	600	-	-	-	-	-8	-22	20	T	-5	-12	-11	-22	
-	-	PD.(D)	150	-	-	-8	-13	83 D	T	-5	-12	-8	-14	
-	-	PD.(D)	300	-	-	-8	-15	87 D	T	-5	-13	-8	-16	
-	-	PD.(D)	500	-	-	-8	-15	87 D	T	-6	-12	-9	-20	
-	-	-	-	LV.(E)	1	-7	-12	18	LD	-4	-12	-11	-14	
-	-	-	-	LV.(E)	5	-8	-13	20	LD	-6	-13	-10	-14	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	-	-	-8	-14	12	LD	-4	-9	-8	-19	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	LV.(E)	1	-8	-14	5	D	-6	-12	-8	-14	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	LV.(E)	5	-8	-15	2	D	-8	-12	-9	-16	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	-	-	-7	-21	10	D	-5	-12	-9	-28	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	LV.(E)	1	-7	-29	0	D	-7	-15	-7	-31	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	LV.(E)	5	-8	-28	0	D	-8	-26	-9	-29	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	-	-	-8	-28	0	D	-7	-19	-8	-30	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	1	-8	-29	0	D	-8	-27	-8	-29	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	5	-8	-28	0	D	-8	-28	-9	-30	



Tabelle III

Mitteldestillat C CP + 4 ° C/CFPP -1 ° C														
Fl (b)		PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase		
Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	Type	Konz. (ppm)	CP (° C)	CFPP (° C)	(Vol.%)		CP (° C)	CFPP (° C)	CP (° C)	CFPP (° C)	
Fl.(A)	150	-	-	-	-	+ 4	- 8	13	T	+ 10	+ 2	- 3	- 6	
Fl.(A)	300	-	-	-	-	+ 3	- 10	20	T	+ 10	- 4	- 2	- 10	
Fl.(A)	600	-	-	-	-	+ 4	- 14	22	T	+ 9	- 7	- 4	- 6	
-	-	PD.(D)	150	-	-	+ 3	- 1	90	K	+ 7	+ 3	+ 3	- 2	
-	-	PD.(D)	300	-	-	+ 4	± 0	90	K	+ 8	+ 2	+ 3	- 4	
-	-	PD.(D)	500	-	-	+ 3	- 1	48	K	+ 6	+ 7	- 4	- 8	
-	-	-	-	LV.(E)	1	+ 4	± 0	80	K	+ 6	+ 4	+ 3	- 4	
-	-	-	-	LV.(E)	5	+ 4	± 0	90	K	+ 6	+ 2	+ 3	- 2	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	-	-	+ 4	- 9	13	T	+ 11	± 0	- 2	- 6	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	LV.(E)	1	+ 3	- 10	5	LD	+ 10	+ 1	- 1	- 7	
Fl.(A)	150	PD.(D)	150	LV.(E)	5	+ 4	- 10	5	LD	+ 9	+ 4	- 3	- 8	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	-	-	+ 4	- 10	18	T	+ 10	- 6	- 2	- 9	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	LV.(E)	1	+ 4	- 9	39	D	+ 8	- 7	+ 1	- 14	
Fl.(A)	300	PD.(D)	300	LV.(E)	5	+ 4	- 8	2	D	+ 5	- 11	+ 3	- 11	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	-	-	+ 4	- 11	20	T	+ 8	- 7	- 1	- 8	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	1	+ 4	- 11	15	D	+ 9	- 8	+ 1	- 16	
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	5	+ 4	- 10	0	D	+ 5	- 11	+ 2	- 15	

Tabelle IV

Mitteldesillat A CP -7 ° C/CFPP -10 ° C													
Fl (b)		PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase	
Typ	Konz. (ppm)	Typ	Konz. (ppm)	Typ	Konz. (ppm)	CP (° C)	CFPP (° C)	(Vol.%)		CP (° C)	CFPP (° C)	CP (° C)	CFPP (° C)
Fl.(B)	300	-	-	-	-	-8	-28	10	LD	-2	-21	-11	-15
Fl.(B)	300	PD.(D)	500	-	-	-8	-29	8	LD	-4	-27	-10	-33
Fl.(B)	300	-	-	LV.(E)	2	-7	-27	10	LD	-3	-26	-10	-29
Fl.(B)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	2	-8	-32	0	D	-7	-30	-7	-28
Fl.(C)	300	-	-	-	-	-7	-26	2	LD	-2	-24	-11	-31
Fl.(C)	300	PD.(D)	500	-	-	-7	-26	0	D	-7	-24	-7	-31
Fl.(C)	300	-	-	LV.(E)	2	-7	-25	8	LD	-10	-20	-3	-29
Fl.(C)	300	PD.(D)	500	LV.(E)	2	-8	-25	0	D	-7	-23	-7	-26

5  
  
10  
  
15  
  
20  
  
25  
  
30  
  
35  
  
40  
  
45  
  
50  
  
55

Tabelle V

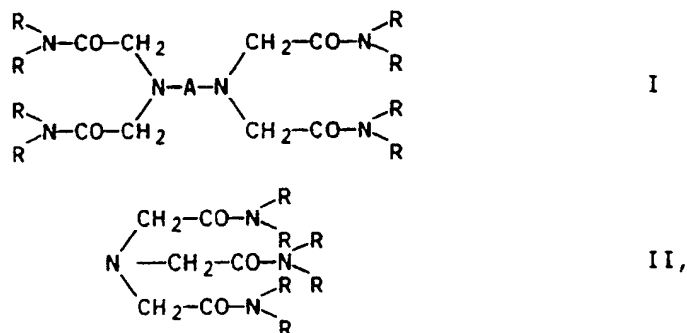
Mitteldestillat A CP -7 ° C/CFPP -10 ° C														
FI (b)			PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase	
Typ	Konz. (ppm)		Typ	Konz. (ppm)	Typ	Konz. (ppm)	CP (° C)	CFPP (° C)	(Vol.%)		CP (° C)	CFPP (° C)	CP (° C)	CFPP (° C)
FI.(A)	300		-	-	-	-	-8	-18	12	T	-4	-12	-11	-17
FI.(A)	300		PD.(H)	500	-	-	-8	-25	0	D	-7	-23	-8	-31
FI.(A)	300		PD.(H)	500	LV.(E)	1	-7	-24	0	D	-7	-25	-8	-26
FI.(A)	300		PD.(H)	500	LV.(E)	5	-8	-26	0	D	-7	-26	-8	-28

Tabelle VI

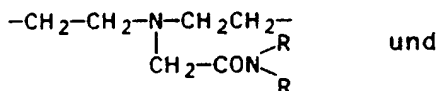
Mitteldestillat A CP -7 ° C/CFPP -10 ° C													
Fl (b)		PD (a)		LV		Vor Lagerung		Paraffin-Sediment	Paraffin/Oelphase	Untere Phase		Obere Phase	
Typ	Konz. (ppm)	Typ	Konz. (ppm)	Typ	Konz. (ppm)	CP (° C)	CFPP (° C)	(Vol.%)		CP (° C)	CFPP (° C)	CP (° C)	CFPP (° C)
Fl.(A)	300	-	-	LV.(F)	1	-8	-18	12	T	-3	-20	-12	-16
Fl.(A)	300	-	-	LV.(F)	5	-7	-19	12	T	-3	-20	-11	-18
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(F)	5	-8	-26	0	D	-7	-28	-7	-29
Fl.(A)	300	-	-	LV.(G)	3	-8	-19	18	T	-3	-12	-11	-17
Fl.(A)	300	-	-	LV.(G)	15	-8	-18	15	T	-3	-17	-11	-21
Fl.(A)	300	PD.(D)	500	LV.(G)	15	-7	-30	0	D	-7	-27	-7	-33

## Ansprüche

1. Amide, Amidammoniumsalze, Ammoniumsalze und deren Gemische von Aminoalkylenpolycarbon-  
säuren der Formeln I und II



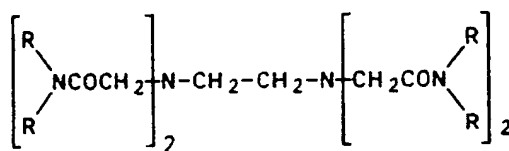
wobei A einen geradkettigen oder verzweigten Alkylrest mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen oder den Rest der  
Formel



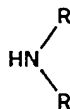
in denen R unabhängig voneinander im wesentlichen geradkettige aliphatische Reste mit 10 bis 30 C-  
Atomen, wobei die Amidgruppen auch als Alkylammoniumcarboxylat-Gruppen mit den genannten Resten R  
vorliegen können, bedeutet.

2. Amide, Amidammoniumsalze, Ammoniumsalze und deren Gemische von Aminoalkylenpolycarbon-  
säuren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Rest R einen geradkettigen Alkylrest mit 14  
bis 24 C-Atomen bedeutet.

3. Verbindungen der Formel



in der R einen geradkettigen Alkylrest mit 10 bis 30 Kohlenstoffatomen bedeutet und wobei ein Teil der  
Amidgruppen oder alle als Dialkylammoniumcarboxylatgruppen der Amine



vorliegen können.

4. Flüssiges Konzentrat für die Zudosierung zu Mitteldestillaten, enthaltend 10 bis 60 Gew.%, bezogen  
auf das Konzentrat, von Verbindungen gemäß Anspruch 1 gelöst in einem Kohlenwasserstofflösungsmittel  
unter Zusatz von mindestens 5 Gew.%, bezogen auf das Konzentrat, an einem Monoester aus Phthalsäure  
und einem aliphatischen Alkohol mit 6 bis 14 C-Atomen.

5. Erdölmitteldestillatzusammensetzungen auf der Basis eines zwischen 160 und 420 °C siedenden

Kohlenwasserstoffgemisches, enthaltend geringe Mengen der Verbindungen der Formeln I und II gemäß Anspruch 1.

6. Mitteldestillatzusammensetzung gemäß Anspruch 4, enthaltend

a) Amide, Amidammoniumsalze, Ammoniumsalze und deren Gemische gemäß Anspruch 1, sowie

b) an sich bekannte als Mitteldestillat-Fließverbesserer geeignete Ethylencopolymere.

7. Mitteldestillatzusammensetzung gemäß Anspruch 4, enthaltend geringe Mengen

a) Amide, Amidammoniumsalze, Ammoniumsalze und deren Gemische, gemäß Anspruch 1

b) an sich bekannte als Mitteldestillat-Fließverbesserer geeignete Ethylencopolymere und

c) Kohlenwasserstoff-Leitfähigkeitsverbesserer, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus kohlenwasserstofflöslichen Carbonsäuren und Sulfonsäuren sowie deren Metall- und Ammoniumsalzen.

8. Mitteldestillatzusammensetzung gemäß Anspruch 6, enthaltend die Komponenten a und b jeweils in Mengen von 50 bis 1000 ppm, bezogen auf die Zusammensetzung.

9. Mitteldestillatzusammensetzungen gemäß Anspruch 6 enthaltend die Komponente (a) in Mengen von 100 bis 500 ppm, die Komponente (b) in Mengen von 50 bis 500 ppm und die Komponente (c) in Mengen von 0,25 bis 40 ppm, bezogen auf die Zusammensetzung.



Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			EP 90108499.6
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.)
X	<u>DE - A1 - 2 624 630</u> (BASF) * Ansprüche; Tabelle 1, Nr. 3 *	1, 2, 8	C 07 C 237/06 C 07 C 229/16 C 10 L 1/22
A	<u>EP - A1 - 0 188 786</u> (BASF) * Ansprüche; Tabelle 1 *	1-3	
A	<u>EP - A1 - 0 055 355</u> (BASF) * Ansprüche; Seite 6, Zeilen 4-16 *	1-3, 5, 6, 8	
A	<u>US - A - 4 810 262</u> (LEWTAS et, al.) * Beispiel *	1-3, 5, 6, 8	
D, A	<u>DE - C3 - 1 914 756</u> (EXXON RESEARCH) * Ansprüche *	6-8	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.)
			C 07 C 237/00 C 07 C 229/00 C 07 C 231/00 C 10 L
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort WIEN		Abschlußdatum der Recherche 16-08-1990	Prüfer KÖRBER
<div>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</div> <div>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : mündliche Offenbarung P : Zwischenliteratur T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</div> <div>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus andern Gründen angeführtes Dokument &amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</div>			

EP Form 1503 03/92

